

# EUROPEAN PATENT OFFICE

## Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 08225420  
PUBLICATION DATE : 03-09-96

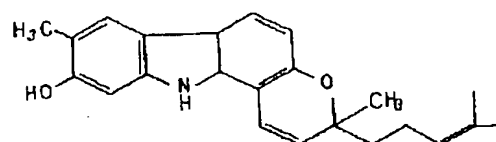
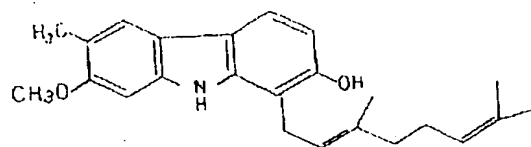
APPLICATION DATE : 09-12-94  
APPLICATION NUMBER : 06331644

APPLICANT : NIPPON FUNMATSU YAKUHI KK;

INVENTOR : SHIN KUNIO;

INT.CL. : A01N 65/00 A01N 43/38 A61K 31/40  
A61K 35/78

TITLE : ANTIMICROBIAL AGENT AND ITS  
PRODUCTION



II

ABSTRACT : PURPOSE: To obtain an antimicrobial agent useful for medicine, cosmetic, food, industrial article, household article, having high safety, showing excellently antimicrobial effect to various microorganisms, comprising an extract prepared from a plant of the genus *Murraya*.

CONSTITUTION: The whole plant or one or more parts of leaf, stem, underground stem and fruit of a plant of the genus *Murraya* are primarily extracted with a polar solvent. Then, the solvent is distilled away from the primary extracted solution and the prepared extract is secondarily extracted with a polar solvent further to give a secondary extract. In the secondary extraction, the extract is washed with water or steam before or after the extraction treatment to give the extract of the plant of the genus *Murraya*. Then, the prepared extract is used as an essential component to give the antimicrobial agent. The extract contains especially a carbazole compound of formula I and/or formula II. The extract contains preferably about 1-50% of the carbazole compound so as to sufficiently show effects as antimicrobial agent. By the method, an active ingredient for the antimicrobial agent can be produced in a high purity, simply and efficiently.

COPYRIGHT: (C)1996,JPO

Applicants: Lingamallu Jagan Mohan  
Rao, et al.  
U.S. Serial No. 10/539,498  
Filed: as §371 national stage of  
PCT/IB2002/005445  
Exhibit 5

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-225420

(43) 公開日 平成8年(1996)9月3日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
A 0 1 N 65/00			A 0 1 N 65/00	A
43/38			43/38	
A 6 1 K 31/40			A 6 1 K 31/40	
35/78	A D Z		35/78	A D Z K

審査請求 未請求 請求項の数13 F D (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平6-331644

(22) 出願日 平成6年(1994)12月9日

(71) 出願人 390019460

稲畑香料株式会社

大阪府大阪市淀川区田川3丁目5番20号

(71) 出願人 390031761

日本粉末薬品株式会社

大阪府大阪市中心区道修町2丁目5番11号

(72) 発明者 稲畑 慶四郎

大阪府大阪市淀川区田川3丁目5番20号

稲畑香料株式会社内

(72) 発明者 新 邦夫

大阪府大阪市中心区道修町2丁目5番9号

日本粉末薬品株式会社内

(74) 代理人 弁理士 清原 義博

(54) 【発明の名称】 抗菌剤及びその製法

(57) 【要約】

【目的】 安全性が高く、各種微生物に対して優れた抗菌効果を発現し、さらに臭気や着色がほとんどなく、製品配合上の制約がなく医薬品、化粧品、食品、工業用品、家庭用品などの幅広い分野において汎用的に利用することのできる抗菌剤を提供すること。

【構成】 ムラヤ属植物から得られる抽出物を必須成分としてなる。ムラヤ属植物としてはゲッキツ (Muraya Koenigii SPRENG) 又はオオバゲッキツ (Muraya Exotica LINN) が例示され、特にこれら植物の精油残渣からの抽出物がより好ましく使用される。

Applicants: Lingamallu Jagan Mohan  
Rao, et al.  
U.S. Serial No. 10/539,498  
Filed: as §371 national stage of  
PCT/IB2002/005445  
Exhibit 5

1

2

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 ムラヤ属植物から得られる抽出物を必須成分としてなることを特徴とする抗菌剤。

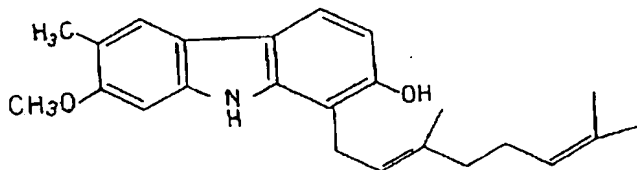
【請求項2】 前記抽出物が精油残渣からの抽出物であることを特徴とする請求項1に記載の抗菌剤。

【請求項3】 前記ムラヤ属植物がゲッキツ (*Murra ya paniculata* Jack) 又はオオバゲッキツ (*Murraya koenigii* Spreng)

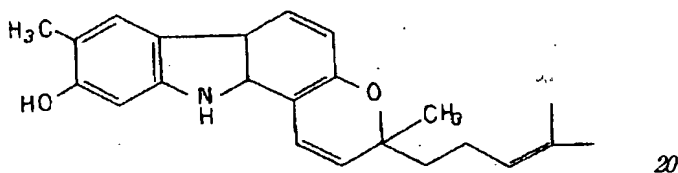
\*ng)であることを特徴とする請求項1又は2に記載の抗菌剤。

【請求項4】 前記抽出物が次式1 (化1) 及び/又は次式2 (化2) で示すカルバゾール化合物を含有してなることを特徴とする請求項1～3のうちのいずれか1項に記載の抗菌剤。

【化1】

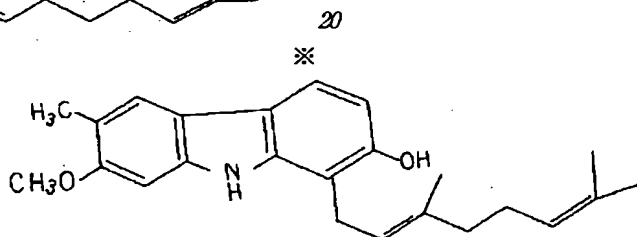


【化2】

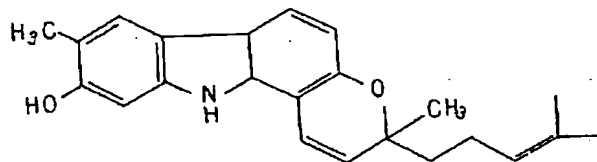


※【請求項5】 次式3 (化3) 及び/又は次式4 (化4) で示すカルバゾール化合物を有効成分としてなることを特徴とする抗菌剤。

【化3】



【化4】



【請求項6】 ムラヤ属植物の全草若しくは葉、茎、地下茎、果実のうちの一部以上の部位を極性溶媒で一次抽出し、この一次抽出液から溶媒を留去した抽出物をさらに極性溶媒で二次抽出して二次抽出物を得る工程において、前記二次抽出処理前又は処理後に抽出物を水又は水蒸気で洗浄してなることを特徴とする抗菌剤の製法。

【請求項7】 ムラヤ属植物の全草若しくは葉、茎、地下茎、果実のうちの一部以上の部位を極性溶媒で一次抽出し、この抽出液から溶媒を留去した抽出物を非極性溶媒で洗浄して抽出物を得る工程において、前記非極性溶媒での洗浄前又は洗浄後の抽出物を水又は水蒸気で洗浄してなることを特徴とする抗菌剤の製法。

【請求項8】 ムラヤ属植物の全草若しくは葉、茎、地下茎、果実のうちの一部以上の部位を非極性溶媒で洗浄し、得られた被洗浄物を極性溶媒で抽出して抽出物を得る工程において、前記抽出処理前の被洗浄物又は処理後

の抽出物を水又は水蒸気で洗浄してなることを特徴とする抗菌剤の製法。

30 【請求項9】 ムラヤ属植物の全草若しくは葉、茎、地下茎、果実のうちの一部以上の部位を非極性溶媒と極性溶媒との混合溶媒中に溶解させて極性溶媒可溶分を得、この可溶分を水又は水蒸気で洗浄して抽出物を得ることを特徴とする抗菌剤の製法。

【請求項10】 前記混合溶媒が非極性溶媒と極性溶媒とを1:99～99:1の割合で含有してなる混合溶媒であることを特徴とする請求項9に記載の抗菌剤の製法。

40 【請求項11】 前記抽出物をさらに吸着剤により精製してなることを特徴とする請求項6～10のうちのいずれかに記載の抗菌剤の製法。

【請求項12】 前記ムラヤ属植物の全草若しくは葉、茎、地下茎、果実が精油抽出後の残渣であることを特徴とする請求項6～11のうちのいずれかに記載の抗菌剤の製法。

【請求項13】 前記ムラヤ属植物がゲッキツ (*Murra ya paniculata* Jack) 又はオオバゲッキツ (*Murraya koenigii* Spreng) であることを特徴とする請求項6～12のうちのいずれかに記載の抗菌剤の製法。

【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】この発明は抗菌剤及びその製法に係り、その目的は極めて安全性が高く、しかも各種微生物に対して優れた抗菌効果を発現し、その上、臭気や着色等が弱く、医薬品、化粧品、食品、工業用品、家庭用品などの幅広い分野において利用することのできる抗菌剤及びこのような抗菌剤を純度良く簡便に製造することのできる抗菌剤の製法を提供することにある。

## 【0002】

【従来の技術】高温多湿な我が国は微生物の繁殖に適した風上である。このためカビや細菌による食品の腐敗、変敗、或いは化粧品、医薬品、さらには各種工業用品の品質劣化が問題となっている。そこで、食品や医薬品、化粧品においては、カビや細菌による品質劣化を防ぐため、安息香酸、p-ヒドロキシ安息香酸エステル、グルコン酸クロルヘキシジン、トリクロサン等の合成化合物が抗菌剤又は保存料として一般に使用されている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら近年に至って、消費者の間に天然物志向が急速に高まるようになると、前記した安息香酸やトリクロサン等の合成化合物からなる抗菌剤ではその安全性に問題があるため、使用が差し控えられる傾向にある。このような実情に照らし、ヒノキチオールやポリリジン等の天然物からなる抗菌剤の使用が主流となってきているが、これら抗菌剤はカビや細菌などの多種多様な微生物に対して十分な抗菌\*

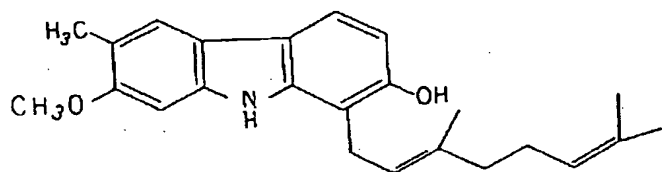
\*性を示すことができず、効果が弱いという課題が存在した。すなわち、前記したヒノキチオールやポリリジン等の天然物からなる抗菌剤では、抗菌性を発現することのできる微生物が限定されており、しかも臭気や着色等の問題により、使用用途が限られてしまい、汎用的ではないという課題が存在した。そこでこの発明は、安全性が高く、しかもカビや細菌等の各種微生物に対して優れた抗菌効果を発現し、さらに臭気や着色がほとんどなく、製品配合上の制約がなく医薬品、化粧品、食品、工業用品、家庭用品などの幅広い分野において汎用的に利用することのできる抗菌剤及びこのような抗菌剤を簡便且つ効率良く製造できる方法の提供を目的とする。

## 【0004】

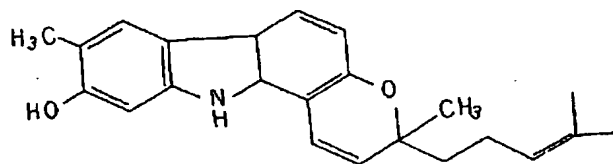
【課題を解決するための手段】この発明は上記課題を解決するためになされたものであって、請求項1の抗菌剤はムラヤ属植物から得られる抽出物を必須成分としてなることとした。請求項2の抗菌剤は前記抽出物が精油残渣からの抽出物であることとした。請求項3の抗菌剤は前記ムラヤ属植物がゲッキツ (*Murraya paniculata* Jack) 又はオオバゲッキツ (*Murraya koenigii* Spreng) であることとした。請求項4の抗菌剤は前記抽出物が次式5 (化5) 及び/又は次式6 (化6) で示すカルバゾール化合物を含有してなることとした。

## 【0005】

## 【化5】

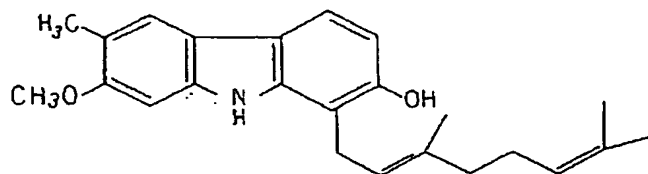


## 【化6】

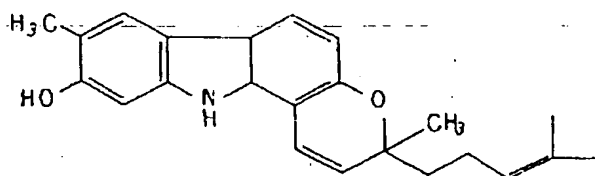


【0006】請求項5の抗菌剤は次式7 (化7) 及び/又は次式8 (化8) で示すカルバゾール化合物を有効成分としてなることとした。

## 【化7】



## 【化8】



【0007】請求項6の抗菌剤の製法はムラヤ属植物の全草若しくは葉、茎、地下茎、果実のうち的一部分以上の部位を極性溶媒で一次抽出し、この一次抽出液から溶媒を留去した抽出物をさらに極性溶媒で二次抽出して二次抽出物を得る工程において、前記二次抽出処理前又は処理後に抽出物を水又は水蒸気で洗浄してなることとした。請求項7の抗菌剤の製法はムラヤ属植物の全草若しくは葉、茎、地下茎、果実のうち的一部分以上の部位を極性溶媒で一次抽出し、この抽出液から溶媒を留去した抽出物を非極性溶媒で洗浄して抽出物を得る工程において、前記非極性溶媒での洗浄前又は洗浄後の抽出物を水又は水蒸気で洗浄してなることとした。請求項8の抗菌剤の製法はムラヤ属植物の全草若しくは葉、茎、地下茎、果実のうち的一部分以上の部位を非極性溶媒で洗浄し、得られた被洗浄物を極性溶媒で抽出して抽出物を得る工程において、前記抽出処理前の被洗浄物又は処理後の抽出物を水又は水蒸気で洗浄してなることとした。請求項9の抗菌剤の製法はムラヤ属植物の全草若しくは葉、茎、地下茎、果実のうち的一部分以上の部位を非極性溶媒と極性溶媒との混合溶媒中に溶解させて極性溶媒可溶分を得、この可溶分を水又は水蒸気で洗浄して抽出物を得ることとした。請求項10の抗菌剤の製法は前記混合溶媒が極性溶媒と非極性溶媒とを1:99~99:1の割合で含有してなる混合溶媒であることとした。請求項11の抗菌剤の製法は前記抽出物をさらに吸着剤により精製してなることとした。請求項12の抗菌剤の製法は前記ムラヤ属植物の全草若しくは葉、茎、地下茎、果実が精油抽出後の残渣であることとした。請求項13の抗菌剤の製法は前記ムラヤ属植物がゲッキツ (*Murraya paniculata* Jack) 又はオオバゲッキツ (*Murraya koenigii* Spreng) であることとした。

#### 【0008】

【発明の構成】以下、この発明に係る抗菌剤及びその製法の構成について詳述する。この発明の抗菌剤では、ムラヤ属植物から得られる抽出物を必須成分とする。ここで、ムラヤ属植物としては、ゲッキツ (*Murraya paniculata* Jack) 又はオオバゲッキツ (*Murraya koenigii* Spreng) が特に望ましく使用できる。ゲッキツ (*Murraya paniculata* Jack) はミカン科ムラヤ属の芳香を有する常緑高木~低木である。また、オオバゲッキツ (*Murraya koenigii* Spreng) も同じくミカン科ムラヤ属の芳香を有する常緑

高木~低木である。

【0009】この発明では以上のようなゲッキツ (*Murraya paniculata* Jack) 又はオオバゲッキツ (*Murraya koenigii* Spreng) 等のムラヤ属植物の全草若しくは葉、茎、地下茎、果実などのいずれの部位でも使用でき、全草又は一部分以上の部位からの抽出物を必須成分とする。或いは、より望ましくはゲッキツ (*Murraya paniculata* Jack) 又はオオバゲッキツ (*Murraya koenigii* Spreng) 等ムラヤ属植物の葉を水蒸気蒸留して精油を採取した残渣を抽出原料とするのが、効果の高い抗菌剤を得ることができるため好ましい。この場合、水蒸気蒸留における留出液量は、原料植物の1~20倍重量、より好ましくは2~10倍重量とされる。この理由は、留出液量が原料植物の等倍量未満であると充分な精油の抽出ができず、一方、20倍重量を越えて使用しても精油の抽出量の増加は期待できないため、いずれの場合も好ましくないからである。

【0010】以上のような抽出原料を乾燥状態、或いは非乾燥状態で、必要に応じて細断し、溶媒にて抽出を行う。この発明の第一の製法では、まず極性溶媒で一次抽出し、得られた抽出液から溶媒を留去した後洗浄を行い、この洗浄物を再度極性溶媒で二次抽出した後、溶媒を留去して抗菌剤有効成分を得る。一次抽出において使用される極性溶媒としては、炭素数1~5の低級アルコール、炭素数1~3の低級アルコールと脂肪酸とのエステル、又は炭素数1~3のケトン類、或いはこれらの含水物が好適に使用され、具体的にはメタノール、エタノール、プロパノール、或いはこれらの含水物、酢酸エチル、アセトン等が例示される。このような極性溶媒は抽出原料に対して、重量比で1~50倍量、より好ましくは5~30倍重量使用される。

【0011】抽出法としては特に限定はされず、常温で1~120時間程度、原料植物を極性溶媒中に浸漬させておく方法であっても、或いは40~70℃程度に溶液を加温して抽出を行ってもよい。この一次抽出により、原料中の有効成分を多量に抽出する。抽出後、抽出液を減圧濃縮して溶媒を留去し、次に洗浄を行う。洗浄は水による洗浄でも、或いは温水、水蒸気を用いた洗浄でもよく、特に限定はされない。水又は温水を用いる場合は抽出物に対して0.1~50倍重量、より具体的には5~30倍重量の水又は温水で洗浄すればよく、水蒸気を用いる場合はその留出液の量が0.1~50倍重量となる範囲で洗浄を行う。この洗浄は数回行われる。このような洗浄工程により、水溶性の着色成分や苦み成分を除去する。得られた洗浄物について、再度極性溶媒により二次抽出を行う。

【0012】この二次抽出では、前記一次抽出に用いた極性溶媒よりも極性をさらに高めた溶媒を使用するのが

望ましく、具体的には40～90%エタノールが好適に例示される。このように二次抽出で用いる溶媒を極性のより高いものとするのは、一次抽出で抽出された極性の低い共雑物を除去するためである。また、抽出は前記一次抽出と同様に行えばよく特に限定はされない。得られた二次抽出液を減圧濃縮し、抗菌剤有効成分を得る。或いはこの第一の製法では、極性溶媒による一次抽出を行った後、抽出液から溶媒を溜去し、この抽出物をさらに極性溶媒で二次抽出した後、得られた抽出物を洗浄して有効成分としてもよい。以上のような第一の製法では、一次抽出で除去されなかった極性溶媒抽出物中の共雑物を二次抽出によりさらに精製するとともに、この二次抽出処理前或いは処理後に洗浄を行い、抽出物中の水溶性成分を除去し、純度の高い有効成分を得る。

【0013】第二の製法では、原料植物を極性溶媒で抽出し、この抽出液から溶媒を溜去した後洗浄し、この洗浄物を非極性溶媒中に溶解して洗浄し、得られた被洗浄物(残渣)を回収して抗菌剤有効成分を得る。或いは極性溶媒抽出物を非極性溶媒中に溶解させて洗浄し、得られた被洗浄物を回収した後、これを水又は水蒸気で洗浄して抗菌剤有効成分としてもよい。抽出に用いる極性溶媒としては前記第一の製法と同様の低級アルコールやエステル、ケトン類が好適に使用できる。また抽出法や洗浄法についても前記と同様の方法が特に限定されことなく使用される。得られた極性溶媒抽出液を溶解させる非極性溶媒としては、炭素数4～12までの炭化水素類、石油エーテル、炭素数3～6までのエーテル、炭素数1～4までの含ハロゲン化合物であればよく、具体的にはヘキサン、ジエチルエーテル、ジクロロメタン、四塩化炭素、ブタジエン、クロロホルム等が例示される。このような非極性溶媒は抽出原料に対して、重量比で0.1～20倍量使用される。得られた抽出液を減圧濃縮して溶媒を溜去し、抗菌剤有効成分を得る。第二の製法では、極性溶媒による一次抽出で、原料中の有効成分を多量に得、さらに非極性溶媒中に溶解させることにより、前記抽出液中に含有される共雑物を除去し、さらに非極性溶媒による洗浄処理前又は処理後に水又は水蒸気により洗浄を行うことによって水溶性の着色成分や苦み成分等を除去し、より純度の高い有効成分を得る。

【0014】第三の製法では原料植物を非極性溶媒中に溶解して洗浄し、得られた被洗浄物(残渣)を回収してこれをさらに水又は水蒸気で洗浄し、この洗浄物を極性溶媒で抽出した後、溶媒を溜去して抗菌剤有効成分を得る。或いは非極性溶媒にて洗浄した被洗浄物を極性溶媒で抽出した後、得られた抽出物を水又は水蒸気で洗浄してもよい。用いる非極性溶媒は、前記第二の製法と同様の炭素数4～12までの炭化水素類、石油エーテル、炭素数3～6までのエーテル、炭素数1～4までの含ハロゲン化合物が好適に使用される。洗浄は水、温水、水蒸

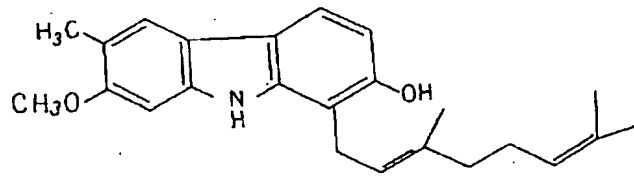
気を用いればよく、抽出に用いる極性溶媒としては前記第一の製法と同様の低級アルコールやエステル、ケトン類が好適に使用できる。第三の製法では原料植物を非極性溶媒中に溶解させて洗浄することにより、非極性溶媒に溶解性を示す共雑物を除去し、ここで得られた被洗浄物を次いで極性溶媒により抽出して極性溶媒に溶解する有効成分を得るとともに、この極性溶媒による抽出の処理前又は処理後に水又は水蒸気で洗浄することにより、被洗浄物又は抽出液中に含まれる水溶性の着色成分や苦み成分を除去し、より純度の高い有効成分を得る。

【0015】第四の製法では原料植物を非極性溶媒と極性溶媒との混合溶媒中に溶解し、このうちの極性溶媒可溶分を回収した後、この可溶分を水又は水蒸気で洗浄して有効成分を得る。用いる非極性溶媒と極性溶媒との混合溶媒は、非極性溶媒と極性溶媒とが1:99～99:1の割合で混合されているものがいずれのものでも使用できるが、より望ましくは極性溶媒と非極性溶媒とが層分離するようにそれぞれの溶媒を用いるのが好ましい。この理由は、混合溶媒中の極性溶媒と非極性溶媒とが互いに混じり合ってしまうと、この発明の目的とする純度の高い有効成分を回収することができず、好ましくないからである。また、用いる非極性溶媒は前記同様の炭素数4～12までの炭化水素類、石油エーテル、炭素数3～6までのエーテル、炭素数1～4までの含ハロゲン化合物が好適に使用され、極性溶媒も低級アルコールやエステル、ケトン類が好適に使用できる。さらに、洗浄は水、温水、水蒸気を用いればよく、特に限定はされない。この第四の製法では非極性溶媒と極性溶媒との混合物中に原料植物を溶解させ、原料植物中の成分を極性溶媒可溶分と不溶分とに分別し、この混合溶媒への溶解により、成分を極性溶媒、非極性溶媒可溶分とに一度で分別して非極性溶媒可溶分を含まない極性溶媒可溶分を回収し、これをさらに水又は水蒸気で洗浄して極性溶媒可溶分中に含有される水溶性の共雑物を除去し、より純度の高い有効成分を得る。

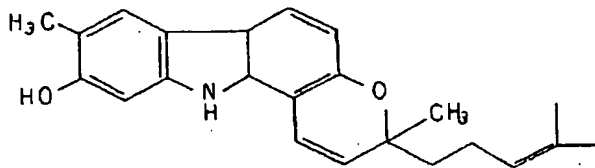
【0016】さらにこの発明では前記第一乃至第四の製法において、得られた有効成分をさらに吸着剤により精製する工程に供してもよい。使用される吸着剤としては、活性炭、ケイソウ土、活性アルミナ、カオリン、珪酸カルシウム、活性白土、シリカゲル等が好適に例示できる。吸着剤の使用量は被処理物に対して0.001～1倍重量、より望ましくは0.1～0.3倍重量使用される。

【0017】以上のような製法により、ムラヤ属植物から抗菌剤有効成分を得ることができるが、この有効成分中には次式9(化9)及び/又は次式10(化10)で示すカルバゾール化合物が含有されている。

【化9】



## 【化10】



【0018】上記カルバゾール化合物は、抗菌剤としての効果を十分に発現させるため抽出物中に1~50%程度含有されていることが望ましい。この発明では、上記したような有効成分を単独で用いて抗菌剤としてもよく、或いはこの発明の効果を損なわない範囲で他の公知の抗菌剤、保存料成分、例えばヒノキチオール、安息香酸等と組み合わせて用いて抗菌剤としてもよく、特に限定はされない。さらに、抗菌剤の剤型としては特に限定はされず、溶液状、ペースト状、粉末状、ブロック状などいずれの剤型にも適宜調製することができる。また、この発明の抗菌剤有効成分は水溶性状態でも、或いは有機溶媒に溶解した状態でもいずれでも安定して抗菌効果を発現するため、剤型の選択には限定されず、担体に担持させてその蒸気圧を利用して徐放する剤型にも調製することができる。しかも、この有効成分は着色や臭気がほとんど認められないため、製品配合において制限がなく、食品、医薬品、化粧品、工業用品、家庭用品などの幅広い分野で利用することができる。

## 【0019】

【実施例】以下、この発明に係る抗菌剤の効果を実施例を挙げるにより一層明確に詳述する。但し、この発明は以下の実施例には限定はされない。

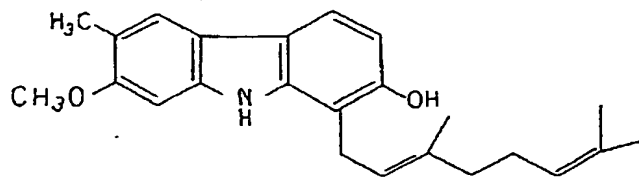
【0020】（実施例1）オオバゲッキツ (*Murra ya paniculata* Jack) の葉1Kgを20Kgのメタノールにて、常温で一昼夜抽出し、一次抽出液を得た。この一次抽出液を減圧濃縮して溶媒を留去して一次抽出物120gを得た。この抽出物に80℃の温水500gを加えて攪拌し、水層と樹脂状固形分層とに分離するまで静置した。水層をデカンテーションに

より分離、除去し、この工程を3回繰り返した。次に分離した樹脂状固形分層に80%エタノール溶液500gを加えて、常温で一昼夜抽出を行った。抽出後、減圧濃縮して溶媒を留去し、約60gの抽出物を得た。

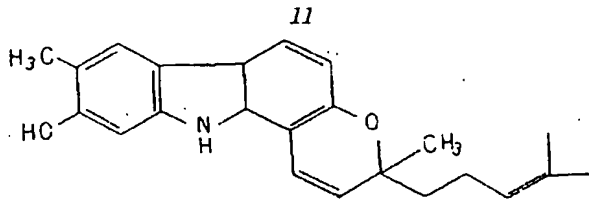
【0021】（実施例2）オオバゲッキツ (*Murra ya koenigii* Spreng) の葉1Kgを20Kgのメタノールにて、常温で一昼夜抽出し、一次抽出液を得た。この一次抽出液を減圧濃縮して溶媒を留去して一次抽出物120gを得た。この抽出物に80℃の温水500gを加えて攪拌し、水層と樹脂状固形分層とに分離するまで静置した。水層をデカンテーションにより分離、除去し、この工程を3回繰り返した。次に分離した樹脂状固形分層にヘキサン150gを加えて、常温で一昼夜抽出を行った。抽出後、濾過して残渣を乾燥させて、約50gの抽出物を得た。

【0022】（実施例3）オオバゲッキツ (*Murra ya koenigii* Spreng) の葉1Kgを20Kgのメタノールにて、常温で一昼夜抽出し、一次抽出液を得た。この一次抽出液を減圧濃縮して溶媒を留去して一次抽出物120gを得た。この抽出物を水500gと酢酸エチル500gとで分液し、酢酸エチル層を濃縮乾固して、さらにシリカゲルクロマトグラフィー (benzene:AcOet=10:1~5:1) により分画し、次いでODSカラムクロマトグラフィー (H<sub>2</sub>O:CH<sub>3</sub>CN=2:8) により分画し、次式11 (化11) で示す化合物400mgと次式12 (化12) で示す化合物4200mgをそれぞれ単離した。次式11 (化11) 及び次式12 (化12) で示す化合物は、磁気共鳴スペクトル分析を行い、そのチャートと標準品の同チャートとを比較対照した結果、それぞれIsomahanine、Murrayanolであると同定した。それぞれの磁気共鳴スペクトル (NMR) のチャートを図1 (Isomahanine)、図2 (Murrayanol) として示す。

## 【化11】



## 【化12】



## 【0023】

【試験例】前記実施例1～3で得られた抽出物について各種腐敗菌に対する最小発育濃度を測定した。使用菌株としては①*Staphylococcus aureus* FDA 209P、②*Bacillus subtilis* IAM 1213、③*Clostridium perfringens* GM Sakaiの3種を用いた。まず、液体培地4mlが入った試験管に濃度を段階的に変化させた実施例1～3で得られた抽出物を0.04mlずつ加え攪拌した。これに前培養した各種菌液0.04mlを添加し、攪拌した。この試験管を37℃で1日間培養した後、この培養液の550nmでの吸光度を測定し、検体の最小発育濃度を測定した。この結果を表1に示す。

## 【0024】

【表1】

	最小発育濃度 (ppm)		
	菌株①	菌株②	菌株③
実施例1	6.3	6.3	6.3
実施例2	6.3	6.3	6.3
実施例3	6.3	6.3	6.3

菌株①: *Staphylococcus aureus* FDA 209P菌株②: *Bacillus subtilis* IAM 1213菌株③: *Clostridium perfringens* GM Sakai

12

【0025】表1の結果から明らかな如く、実施例の抽出物は腐敗菌に対して強い抗菌効果があることが判る。また、実施例1～3の抽出物はそれぞれ同等の抗菌効果を示しているから、Isomahanine、Murrayanolといった化合物以外の抽出物含有物の成分間相互によっても抗菌効果が発現されることが判る。

## 【0026】

【発明の効果】以上詳述した如く、この発明はムラヤ属植物から得られる抽出物を必須成分としてなることを特徴とする抗菌剤であるから、前記試験例の結果からも明らかな如く、極めて安全性が高く、しかも各種微生物に対して優れた抗菌効果を発現し、その上、配合製品に臭気や着色等を付与することがないから、医薬品、化粧品、食品、工業用品、家庭用品などの幅広い分野において汎用的に利用することができるという優れた効果を奏する。またこの発明はムラヤ属植物の全草若しくは葉、茎、地下茎、果実のうち的一部分以上の部位を極性溶媒で一次抽出し、この一次抽出液から溶媒を留去した抽出物をさらに極性溶媒で二次抽出して二次抽出物を得る工程において、前記二次抽出処理前又は処理後に抽出物を水又は水蒸気で洗浄してなることを特徴とする抗菌剤の製法であるから、医薬品、化粧品、食品、工業用品、家庭用品などの幅広い分野において汎用的に利用することができる抗菌剤有効成分を、より純度の高い状態で簡便且つ効率良く製造することができるという優れた効果を奏する。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】実施例3において得られた化合物Isomahanineの磁気共鳴スペクトル(NMR)分析の結果を示すチャート図である。

【図2】実施例3において得られた化合物Murrayanolの磁気共鳴スペクトル(NMR)分析の結果を示すチャート図である。

【図1】

